

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problems Mailbox.**

THIS PAGE BLANK (USPTO)

PCT/JPO 09/07982
09/869864

09.03.01

日本国特許庁
PATENT OFFICE
JAPANESE GOVERNMENT

JPOO/7982

RECD.	12 MAR 2001
WFO	PCT

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されて
いる事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed
with this Office.

115

出願年月日
Date of Application:

2000年 5月31日

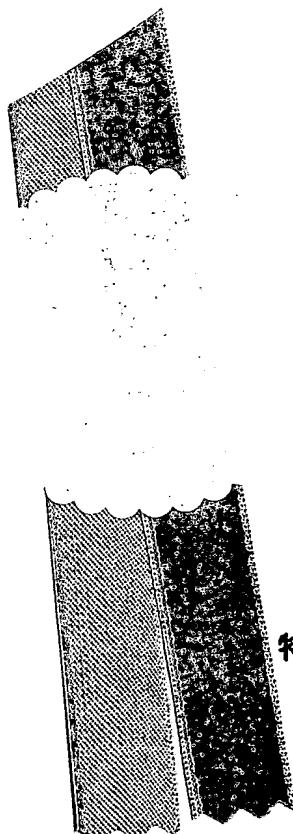
出願番号
Application Number:

特願2000-163415

出願人
Applicant(s):

鐘淵化学工業株式会社

EJKV



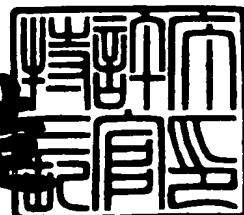
PRIORITY
DOCUMENT

SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

2001年 4月13日

特許庁長官
Commissioner,
Patent Office

及川耕造



出証番号 出証特2001-3029356

【書類名】 特許願

【整理番号】 A000002964

【提出日】 平成12年 5月31日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 G02B 5/30
G02F 1/1335 510
C08J 5/18

【発明の名称】 延伸フィルム及びそれを用いた偏光子保護フィルム

【請求項の数】 7

【発明者】

【住所又は居所】 兵庫県神戸市兵庫区吉田町1-2-80 鐘淵化学工業
株式会社内

【氏名】 田中 滋

【発明者】

【住所又は居所】 兵庫県神戸市兵庫区吉田町1-2-80 鐘淵化学工業
株式会社内

【氏名】 川端 裕輔

【発明者】

【住所又は居所】 兵庫県神戸市兵庫区吉田町1-2-80 鐘淵化学工業
株式会社内

【氏名】 淡路 弘

【特許出願人】

【識別番号】 000000941

【氏名又は名称】 鐘淵化学工業株式会社

【代理人】

【識別番号】 100058479

【弁理士】

【氏名又は名称】 鈴江 武彦

【電話番号】 03-3502-3181

【選任した代理人】

【識別番号】 100084618

【弁理士】

【氏名又は名称】 村松 貞男

【選任した代理人】

【識別番号】 100068814

【弁理士】

【氏名又は名称】 坪井 淳

【選任した代理人】

【識別番号】 100092196

【弁理士】

【氏名又は名称】 橋本 良郎

【選任した代理人】

【識別番号】 100091351

【弁理士】

【氏名又は名称】 河野 哲

【選任した代理人】

【識別番号】 100088683

【弁理士】

【氏名又は名称】 中村 誠

【選任した代理人】

【識別番号】 100109830

【弁理士】

【氏名又は名称】 福原 淑弘

【先の出願に基づく優先権主張】

【出願番号】 特願2000- 94904

【出願日】 平成12年 3月30日

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 011567

特2000-163415

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9902539

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 延伸フィルム及びそれを用いた偏光子保護フィルム

【特許請求の範囲】

【請求項1】 (A) 側鎖に置換または非置換イミド基を有する熱可塑性樹脂、および(B) 側鎖に置換または非置換フェニル基とニトリル基を有する熱可塑性樹脂を含有する樹脂組成物からなるフィルムを少なくとも一方向に延伸したフィルムであって、フィルムの平面方向の位相差が20nm未満であることを特徴とする延伸フィルム。

【請求項2】 フィルムの厚み方向の位相差が100nm以下であることを特徴とする請求項1に記載の延伸フィルム

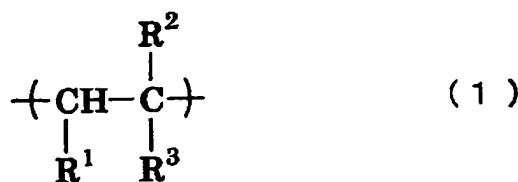
【請求項3】 フィルムの耐揉疲労が30回以上であることを特徴とする請求項1または請求項2に記載の延伸フィルム。

【請求項4】 フィルムの引裂伝播強度が、150gf/mm以上であることを特徴とする請求項1ないし請求項3のいずれか1項に記載の延伸フィルム。

【請求項5】 フィルムのガラス転移温度が130℃以上であることを特徴とする請求項1ないし請求項4のいずれか1項に記載の延伸フィルム。

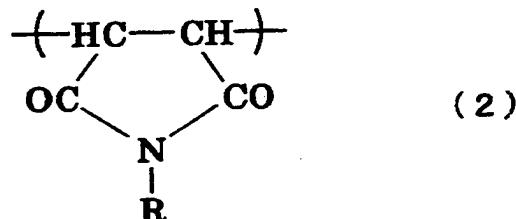
【請求項6】 熱可塑性樹脂(A)が、下記式(1)で表される単位と下記式(2)で表される単位を有し、かつ式(1)で表される単位が式(1)で表される単位と式(2)で表される単位の合計に対して40～60モル%を構成し、式(2)で表される単位が式(1)で表される単位と式(2)で表される単位の合計に対して60～40モル%を構成する熱可塑性樹脂であり、熱可塑性樹脂(B)が、下記式(3)で表される単位と下記式(4)で表される単位を有し、かつ式(3)で表される単位が式(3)で表される単位と式(4)で表される単位の合計に対して20～50重量%を構成し、式(4)で表される単位が式(3)で表される単位と式(4)で表される単位の合計に対して50～80重量%を構成する熱可塑性樹脂であり、樹脂組成物が熱可塑性樹脂(A)を60～80重量%の割合で、および熱可塑性樹脂(B)を20～40重量%の割合で含有することを特徴とする請求項1記載の延伸フィルム。

【化1】



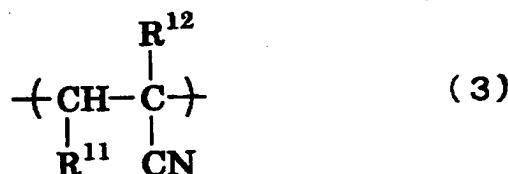
(ここで、 R^1 、 R^2 および R^3 は、それぞれ独立に、水素または炭素数1～8のアルキル基を示す。)

【化2】



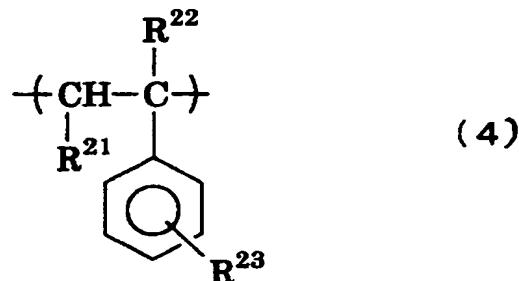
(ここで、 R は、炭素数1～18のアルキル基、または炭素数3～12のシクロアルキル基を示す。)

【化3】



(ここで、 R^{11} および R^{12} は、それぞれ独立に、水素または炭素数1～8のアルキル基を示す。)

【化4】



(ここで、R²¹およびR²²は、それぞれ独立に、水素または炭素数1～8のアルキル基を示し、R²³は、水素、炭素数1～8のアルキル基、ハロゲン、水酸基、アルコキシ基またはニトロ基を示す。)

【請求項7】 請求項1ないし請求項6のいずれか1項に記載の延伸フィルムを用いてなる偏光子保護フィルム。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、特定の熱可塑性樹脂からなる光学的特性に優れた透明な延伸フィルム及びそれを用いてなる偏光子保護フィルムに関する。さらに詳しくは、本発明は、透明性に優れ、フィルムの平面方向の位相差と厚み方向の位相差が小さい、少なくとも一方向に延伸されたフィルム及びそれを用いてなる偏光子保護フィルムに関する。

【0002】

【従来の技術】

近年、ノート型パソコン、ワードプロセッサ、携帯電話、携帯情報端末等の小型化・薄型化・軽量化にともない、これらの電子機器に軽量・コンパクトという特長を生かした液晶表示装置が多く用いられるようになってきている。液晶表示装置には、その表示品位を保つために偏光フィルム等の各種フィルムが用いられている。また、携帯情報端末や携帯電話向けに液晶表示装置を更に軽量化するため、ガラス基板の代わりにプラスチックフィルムを用いた液晶表示装置も実用化されている。

【0003】

液晶表示装置の様に偏光を取り扱う装置に用いるプラスチックフィルムには、光学的に透明である他に光学的な均質性が求められ、高度に延伸したポリビニアルコールからなる偏光子を保護するための偏光保護フィルムや、ガラス基板を樹脂フィルムに代えたプラスチック液晶表示装置用のフィルム基板の場合、複屈折と厚みの積で表される位相差の小さい他、外部の応力などによりフィルムの位相差が変化しにくいことが要求される。

【0004】

液晶表示装置に用いられるプラスチックフィルムとして、ポリカーボネート、ポリアリレート、ポリスルホン、ポリエーテルスルホン等のエンジニアリングプラスチックスや、トリアセチルセルロース等のセルロース類のプラスチックからなるフィルムが知られている。これらプラスチックフィルムを製造する場合、プラスチックの溶融流動・溶剤乾燥収縮・熱収縮や搬送応力等により成形中のフィルムに各種応力がかかり、得られるフィルムには、応力により誘起される分子配向に起因する位相差が残存する。そのため必要に応じ熱アニール等のフィルムに対する特別な処理を施し残存する位相差を低減させなければならず製造工程が煩雑になるなどの問題がある。また、残存する位相差を低減させたフィルムを用いた場合でも、フィルムの加工時に生じる応力や変形により新たな位相差を生じる。更に、偏光保護フィルムとして用いられる場合、偏光子の収縮応力により該フィルムに好ましくない位相差が生じ、偏光フィルムの偏光性能に悪影響を及ぼす事が知られている。

【0005】

これらの問題を解決するため、より分極の小さい、すなわち、分子の配向による位相差が発現しにくいプラスチックフィルムを得ることが試みられており、シクロオレフィン系フィルムや、マレイミド成分を有するオレフィン系フィルムが提案されている。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】

上記シクロオレフィン系フィルムや、マレイミド成分を有するオレフィン系フ

イルムはフィルムの平面方向の位相差は比較的小さい。しかし、特に溶剤キャスト法により製造されたフィルムは、その配向複屈折のためにフィルムの厚み方向の位相差が大きいことによるフィルムの視野角特性が悪く、大画面や広視野角用の液晶表示装置への使用が制限される。

【0007】

一方、特開2000-80240号公報に記載されているような、オレフィン-マレイミド系樹脂とスチレンーアクリロニトリル系樹脂を有するフィルムは上記複屈折を更に小さくできるため、好ましい材料として期待されるが、脆いため、裂けやすい、割れやすい等、機械的特性に問題があり、実用上の問題を抱えている。フィルムの機械特性を改善するために、特開平9-234786号公報に見られるように、フィルムを延伸することが考えられるが、延伸加工等により分子を強く配向させると位相差が大きくなるため、偏光子保護フィルム等の光学用途に使用できなくなるという問題があった。

【0008】

従って、本発明の目的は、延伸によってフィルム伸び率や引裂伝播強度、耐揉疲労等の機械的強度を向上させても、フィルムの平面方向および厚み方向に位相差が実質的に発生しないフィルムを提供することにある。

【0009】

【課題を解決するための手段】

上記課題を解決するため、本発明者等は銳意研究の結果、特定の組成を有する樹脂組成物からなるフィルムは、延伸によってフィルム伸び率や引裂伝播強度、耐揉疲労等の機械的強度を向上させても、フィルムの平面方向および厚み方向に位相差が実質的に発生しないことを見いだし、本発明に至った。

【0010】

すなわち、本発明は、(A) 側鎖に置換または非置換イミド基を有する熱可塑性樹脂、および(B) 側鎖に置換または非置換フェニル基とニトリル基を有する熱可塑性樹脂を含有する樹脂組成物からなるフィルムを少なくとも一方向に延伸したフィルムであって、フィルムの平面方向の位相差が20nm未満であることを特徴とする延伸フィルムを提供する。

【0011】

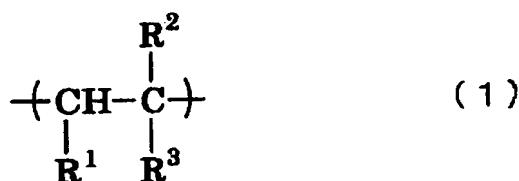
本発明の延伸フィルムは、厚み方向の位相差が100nm以下であり、また耐揉疲労が30回以上であり、さらに引裂伝播強度が、150gf/mm以上であるという優れた特性を示し、ガラス転移温度が130℃以上であるという耐熱性を示す。

【0012】

本発明において、熱可塑性樹脂(A)が、下記式(1)で表される単位と下記式(2)で表される単位を有し、かつ式(1)で表される単位が式(1)で表される単位と式(2)で表される単位の合計に対して40～60モル%を構成し、式(2)で表される単位が式(1)で表される単位と式(2)で表される単位の合計に対して60～40モル%を構成する熱可塑性樹脂であり、熱可塑性樹脂(B)が、下記式(3)で表される単位と下記式(4)で表される単位を有し、かつ式(3)で表される単位が式(3)で表される単位と式(4)で表される単位の合計に対して20～50重量%を構成し、式(4)で表される単位が式(3)で表される単位と式(4)で表される単位の合計に対して50～80重量%を構成する熱可塑性樹脂であり、樹脂組成物が熱可塑性樹脂(A)を60～80重量%の割合で、および熱可塑性樹脂(B)を20～40重量%の割合で含有することが特に好ましい。

【0013】

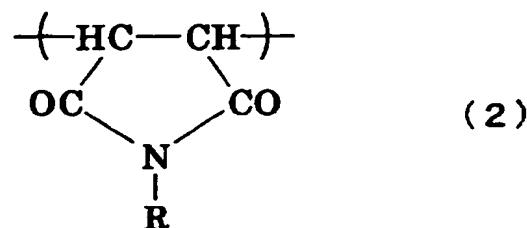
【化5】



(ここで、R¹、R²およびR³は、それぞれ独立に、水素または炭素数1～8のアルキル基を示す。)

【0014】

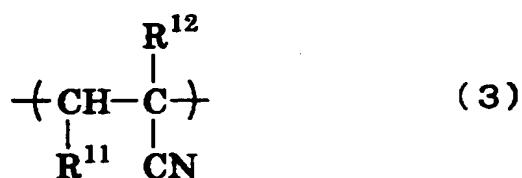
【化 6】



(ここで、Rは、炭素数1～18のアルキル基、または炭素数3～12のシクロアルキル基を示す。)

[0015]

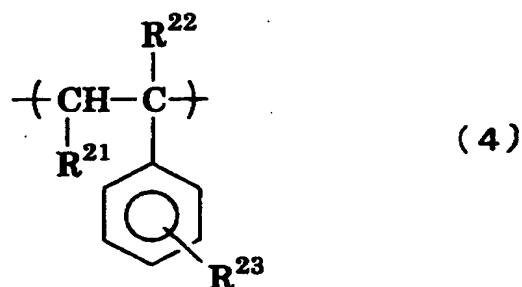
【化7】



(ここで、 $R^{1\ 1}$ および $R^{1\ 2}$ は、それぞれ独立に、水素または炭素数 1 ~ 8 のアルキル基を示す。)

[0016]

〔化8〕



(ここで、 R^{21} および R^{22} は、それぞれ独立に、水素または炭素数 1 ~ 8 のアルキル基を示し、 R^{23} は、水素、炭素数 1 ~ 8 のアルキル基、ハロゲン、水酸基、アルコキシ基またはニトロ基を示す。)。

[0 0 1 7]

他の側面において、本発明は、前記の延伸フィルムを用いてなる偏光子保護フィルムを提供する。

【0018】

なお、フィルムの厚み方向の位相差は、フィルム平面方向の最大屈折率を n_x 、 n_x と直交する方向の屈折率を n_y 、フィルム厚み方向の屈折率を n_z 、フィルムの厚みを d としたとき、下記式：

【0019】

【数1】

$$| (n_x + n_y) / 2 - n_z | \times d$$

で表される。

【0020】

【発明の実施の形態】

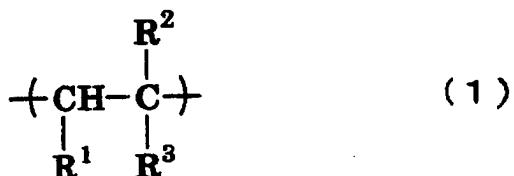
本発明の延伸フィルムは、(A) 側鎖に置換または非置換イミド基を有する熱可塑性樹脂、および(B) 側鎖に置換または非置換フェニル基とニトリル基を有する熱可塑性樹脂を含有する樹脂組成物から作られる。

【0021】

本発明に用いられる熱可塑性樹脂(A)は、好ましくは、少なくとも1種のオレフィン(アルケン)から誘導される繰り返し単位と少なくとも1種の置換あるいは非置換マレイイミド構造を有する繰り返し単位とを含有する共重合体(二元もしくはそれ以上の多元共重合体)である。特に好ましくは、熱可塑性樹脂(A)は、下記式(1)で表される繰り返し単位と下記式(2)で表される繰り返し単位を含有する。

【0022】

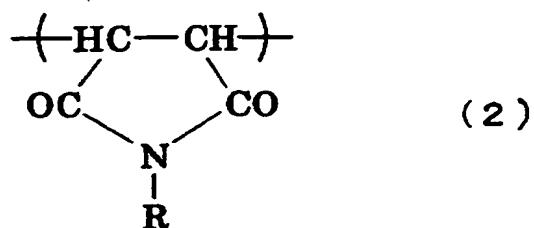
【化9】



(ここで、 R^1 、 R^2 および R^3 は、それぞれ独立に、水素または炭素数1～8のアルキル基を示す。)

【0023】

【化10】



(ここで、Rは、水素、炭素数1～18のアルキル基、または炭素数3～12のシクロアルキル基を示す。)

【0024】

式(1)の繰り返し単位(オレフィン単位)は、下記式(1)の単位に対応するオレフィン化合物から誘導することができる。そのようなオレフィンの好ましい例を挙げると、イソブテン、2-メチル-1-ブテン、2-メチル-1-ペンテン、2-メチル-1-ヘキセン、2-メチル-1-ヘプテン、1-イソオクテン、2-メチル-1-オクテン、2-エチル-1-ペンテン、2-エチル-2-ブテン、2-メチル-2-ペンテン、2-メチル-2-ヘキセン等である。これらオレフィンは、単独で、あるいは2種以上組合せて用いることができる。

【0025】

上記式(2)の繰り返し単位(マレイミド単位)は、対応するマレイミド化合物から誘導することができる。そのようなマレイミド化合物の好ましい例を挙げると、マレイミド、並びにN-メチルマレイミド、N-エチルマレイミド、N-n-プロピルマレイミド、N-i-プロピルマレイミド、N-n-ブチルマレイミド、N-i-ブチルマレイミド、N-s-ブチルマレイミド、N-t-ブチルマレイミド、N-n-ペンチルマレイミド、N-n-ヘキシリルマレイミド、N-n-ヘプチルマレイミド、N-n-オクチルマレイミド、N-ラウリルマレイミド、N-ステアリルマレイミド、N-シクロプロピルマレイミド、N-シクロブチルマレイミド、N-シクロペンチルマレイミド、N-シクロヘキシリルマレイミ

ド、N-シクロヘプチルマレイミド、N-シクロオクチルマレイミド等のN-置換マレイミドである。これらマレイミド化合物は、単独で、または2種以上を組み合わせて用いることができる。マレイミド化合物としては、N-置換マレイミド（Rが水素以外の基に相当する化合物）が特に好ましい。

【0026】

本発明の熱可塑性樹脂（A）は、上記オレフィンとマレイミド化合物とをそれ自体既知の重合方法により重合させることにより製造することができる。この重合には、グラフト重合も含まれる。あるいは、本発明の熱可塑性樹脂（A）は、上記オレフィンとマレイン酸とを常法に従って重合させて前駆重合体を製造し、これにアミン化合物を反応させて前駆重合体のマレイン酸部位をイミド化することによっても製造することができる。その場合に使用するアミン化合物としては、上記式（2）のマレイミド単位におけるイミド部位に対応するアミンが含まれ、より具体的には、式 $R-NH_2$ （ただし、Rは、式（2）と同じ。）で表されるアミン化合物、例えばメチルアミン、エチルアミン、n-プロピルアミン、i-プロピルアミン、n-ブチルアミン、s-ブチルアミン、t-ブチルアミン、シクロヘキシリルアミン等のアルキルアミンやアンモニアの他、ジメチル尿素、ジエチル尿素等を好ましく例示することができる。この場合にも、上記式（1）の繰り返し単位と式（2）の繰り返し単位を有する共重合体が得られる。

【0027】

本発明の熱可塑性共重合体（A）は、上記オレフィン単位とマレイミド単位以外に、第3成分として、他の共重合性单量体を1種以上含有することができる。そのような共重合性单量体には、アクリル酸メチルやアクリル酸ブチルのようなアクリル酸エステル单量体、メタクリル酸メチルやメタクリル酸シクロヘキシリルのようなメタクリル酸エステル单量体、酢酸ビニル等のビニルエステル单量体、メチルビニルエーテルのようなビニルエーテル单量体等のビニル单量体、並びに無水マレイン酸のような不飽和二重結合を有する酸無水物等が含まれる。これら第3成分は、2種以上を組み合わせて用いることができる。第3成分を光学的特性を損なわない程度に含有させることにより、熱可塑性共重合体（A）の耐熱性を向上させたり、機械的強度を増大させたりすることができる。

【0028】

本発明の熱可塑性共重合体（A）は、ランダム共重合体、ブロック共重合体、グラフト共重合体、交互共重合体のいずれであってもよいが、交互共重合体であることが好ましい。本発明の熱可塑性共重合体（A）は、より好ましくは、マレイミド単位として、式（2）におけるRがメチル基、エチル基、イソプロピル基およびシクロヘキシリ基から選ばれたアルキル基である少なくとも1種のマレイミド単位を含有し、オレフィン単位として、式（1）におけるR¹が水素であり、R²およびR³がそれぞれメチル基である少なくとも1種のオレフィン単位を含有する共重合体である。さらに好ましくは、本発明の熱可塑性共重合体（A）は、マレイミド単位としてN-メチルマレイミド単位を含有し、オレフィン単位としてイソブチレン単位を含有する。本発明の熱可塑性共重合体（A）は、N-置換マレイミドとイソブテンとの交互共重合体であることが特に好ましい。

【0029】

本発明の熱可塑性共重合体（A）において、マレイミド単位の含有率は、30モル%以上80モル%未満であることが好ましい。マレイミド単位の含有率がこの範囲を逸脱すると、得られるフィルムの耐熱性や機械的強度が損なわれるおそれがある。マレイミド単位の含有率は、より好ましくは、40モル%以上60モル%以下である。第3成分は、これを添加する場合には、その含有率が5モル%以上30モル%以下であることが好ましい。熱可塑性共重合体（A）の残りは、オレフィン単位である。本発明の熱可塑性共重合体（A）は、マレイミド単位とオレフィン単位とを主成分（好ましくは、マレイミド単位とオレフィン単位との合計が、熱可塑性共重合体（A）の70モル%以上）として含むことが特に好ましい。また、本発明の熱可塑性共重合体（A）は、 1×10^4 以上 5×10^5 以下の重量平均分子量を有することが好ましい。

【0030】

さらに、本発明の熱可塑性共重合体（A）は、ガラス転移温度が好ましくは80℃以上、より好ましくは100℃以上、さらに好ましくは130℃以上であるような耐熱性を示すことが好ましい。

【0031】

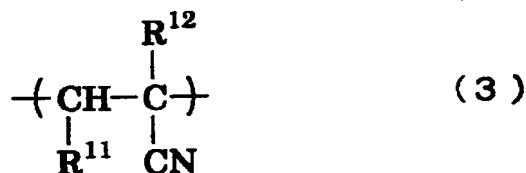
本発明のオレフィン-マレイミド共重合体は、既述のようにそれ自体既知の方法で製造することができ、例えば特開平5-59193号公報、特開平5-195801号公報、特開平6-136058号公報および特開平9-328523号公報に記載されているように、オレフィンとマレイミド化合物とを直接共重合させたり、その一方の重合体に他方をグラフト共重合したり、あるいは前述した前駆重合体に対してアミン化合物を反応させてイミド結合を導入することによつて製造することができる。

【0032】

次に、本発明に用いられる熱可塑性樹脂（B）は、好ましくは、不飽和ニトリル化合物から誘導される繰り返し単位（ニトリル単位）とスチレン系化合物から誘導される繰り返し単位（スチレン系単位）とを含む共重合体（二元もしくは三元以上の多元共重合体）である。特に好ましくは、熱可塑性樹脂（B）は、下記式（3）で示される不飽和ニトリル単位と下記式（4）で示されるスチレン系単位を含む。

【0033】

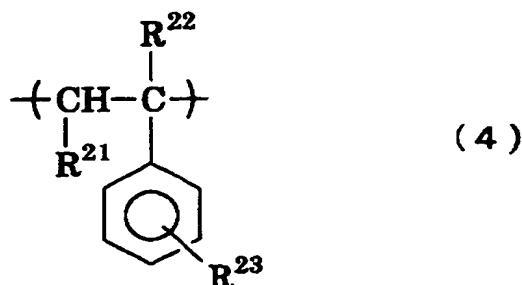
【化11】



（ここで、 R^{11} および R^{12} は、それぞれ独立に、水素または炭素数1～8のアルキル基を示す。）

【0034】

【化12】



(ここで、 R^{21} および R^{22} は、それぞれ独立に、水素または炭素数1~8のアルキル基を示し、 R^{23} は、水素、炭素数1~8のアルキル基、ハロゲン、水酸基、アルコキシ基またはニトロ基を示す。)。

【0035】

上記の好ましい共重合体(B)を構成する不飽和ニトリル化合物の好ましい例を挙げると、アクリロニトリルやメタクリロニトリルのような α -置換不飽和ニトリル、フマロニトリルのような α 、 β -二置換オレフィン性不飽和結合を有するニトリル化合物である。

【0036】

上記の好ましい共重合体(B)を構成するスチレン系化合物としては、スチレン、ビニルトルエン、メトキシスチレンまたはクロロスチレン等の非置換または置換スチレン系化合物や、 α -メチルスチレン等の α -置換スチレン系化合物を用いることができる。

【0037】

本発明の熱可塑性共重合体(B)は、上記ニトリル単位とスチレン系単位以外に、第3成分として、他の共重合性单量体を含有していてもかまわない。そのような第3成分には、好ましくは、ブチルアクリレート等のアクリル系单量体、エチレンやプロピレン等のオレフィン系单量体が含まれ、これら单量体を1種または2種以上を共重合させることにより、得られたフィルムの可撓性を向上させることができる。また、第3成分としては、N-置換マレイミドを用いることもでき、このN-置換マレイミド、特にフェニルマレイミドを共重合成分として用いることにより、当該共重合体の耐熱性を向上させることができる。

【0038】

本発明の熱可塑性共重合体（B）は、これら単量体を直接共重合させることにより得られるが、スチレン系化合物の重合体および不飽和ニトリル化合物の重合体の一方に、他方をグラフト共重合させてもよい。また、ゴム弾性を有するアクリル系重合体にスチレン系化合物および不飽和ニトリル系化合物をグラフト重合させることにより好ましい共重合体を得ることができる。特に好ましい熱可塑性共重合体は、不飽和ニトリル成分としてアクリロニトリルを含有し、スチレン系成分としてスチレンを含有する共重合体である。これら共重合体はA-S樹脂やA-A-S樹脂として知られている。

【0039】

本発明の熱可塑性共重合体（B）において、不飽和ニトリル単位とスチレン系単位の比率は、好ましくは、前者が20～50重量%であり、後者が50～80重量%であり、より好ましくは、前者が20～40重量%であり、後者が60～80重量%である。特に、前者が20～30重量%で、後者が70～80重量%の場合は更に好ましい結果を与える。スチレン系化合物やニトリル系化合物の成分为この範囲を超えると、（A）の熱可塑性樹脂との相溶性が乏しくなり、得られるフィルムの透明性が低下しヘーネスが大きくなり好ましくない。第3成分は、これを添加する場合は、熱可塑性共重合体（B）中の含有率は5重量%以上、30重量%以下であることが好ましい。本発明の熱可塑性共重合体（B）は、不飽和ニトリル単位とスチレン系単位とを主成分（好ましくは、不飽和ニトリル単位とスチレン系単位との合計が、熱可塑性共重合体（B）の70重量%以上）として含むことが特に好ましい。また、本発明の熱可塑性共重合体（B）は、 1×10^4 ないし 5×10^5 の重量平均分子量を有することが好ましい。

【0040】

本発明の延伸フィルムを得るために用いる場合において、熱可塑性樹脂（A）と熱可塑性樹脂（B）は、前者60～95重量%に対して、後者5～40重量%の割合で配合することが好ましい。熱可塑性樹脂（B）がこの範囲を超えると、延伸フィルムにした場合、平面方向、厚み方向の位相差が大きくなるおそれがある。また、熱可塑性樹脂（B）の配合率が40重量%を越えると、得られるフィ

ルムの透明性が低下する。両樹脂（A）および（B）を上記割合で配合することにより、フィルムの平面方向、厚み方向ともに位相差が極めて小さい延伸フィルムとすることができます。熱可塑性樹脂（A）と熱可塑性樹脂（B）は前者60～80重量%に対して、後者20～40重量%の割合で配合することがより好ましく、前者65～75重量%に対して、後者25～35重量%の割合は特に好ましい。

【0041】

特に好ましい混合比は熱可塑性樹脂（A）および（B）の種類にも依存するが、一般的には、熱可塑性樹脂（B）中のフェニル基モル数Pに対する熱可塑性樹脂（A）中のイミド基モル数Iの比（I／P比）が1.7～2.9、より好ましくは1.8～2.6となるように配合することが好ましい。

【0042】

N-メチルマレイミドとイソブテンの交互重合体を熱可塑性樹脂（A）として選択し、アクリロニトリルとスチレンの共重合体を熱可塑性樹脂（B）として選択した場合の好ましい（A）：（B）の重量比は60：40～80：20、より好ましくは、65：35～75：25であり、かつ、熱可塑性樹脂（B）中のアクリロニトリル成分が20～30重量%、より好ましくは25～29重量%である。この様な組成とすることにより、フィルムの平面方向の位相差が10nm以下、フィルム厚み方向の位相差が50nm以下という、実質的に複屈折を示さず、かつ、光線透過率が85%以上、ヘーズが2%以下である、延伸フィルムを得ることができる。

【0043】

本発明の延伸フィルムは、フィルムの平面方向の位相差が20nm未満である。フィルムの平面方向の位相差が20nmを越えると液晶表示装置において位相差に起因した光漏れによるコントラスト不良の原因となる。フィルムの平面方向の位相差は、より好ましくは10nm以下であり、更に好ましくは5nm以下である。

【0044】

また、フィルムを斜めから見た場合の位相差の小さいことが、フィルムの視野

角特性を良好に保つためには必要であり、それにはフィルムの厚み方向の位相差の小さいことが必要である。本発明の延伸フィルムは、厚み方向の位相差が、100 nm以下であり、より好ましくは50 nm以下、更に好ましくは25 nm以下のフィルムを得ることができる。フィルムの厚み方向の位相差が100 nmを越えると広い視野角を有する液晶表示装置が得られにくくなり、大画面化が困難となる。

【0045】

本発明の延伸フィルムは、フィルムの耐揉疲労が30回以上であることが好ましい。またフィルムの引裂伝播強度が150 gf/mm以上である事が好ましい。耐揉疲労や引裂伝播強度が上記値より小さい場合、フィルムの製造や加工の際に、割れたり引裂ける原因となる。

【0046】

本発明に関わる樹脂組成物を得る方法として、熱可塑性樹脂（A）と熱可塑性樹脂（B）を単に混合することにより樹脂組成物を得る方法や、両樹脂を熱溶融混練して樹脂組成物を得る方法が挙げられるが、フィルム化に先立ち、用いる樹脂組成物を予備乾燥しておくことはフィルムの発泡など、欠陥を防ぐ上で有用である。これらの樹脂組成物は、必要に応じて、可塑剤、熱安定剤、紫外線吸収剤やフィラー等の公知の添加剤やその他の重合体を含有してもよい。

【0047】

上記樹脂組成物をフィルム化するためには、公知の方法、例えば、溶融押出し法、インフレーション法、溶液流延法等のいずれをも採用することができるが、溶液流延法が特に好ましい。この方法により、ダイライン等の欠陥がなく、フィルム厚みのバラツキが5%以下と小さく、また位相差の小さい光学的に等方なフィルムを得ることができる。

【0048】

溶液流延法に用いることのできる溶剤は、樹脂材料（樹脂（A）および（B））の種類に応じて、公知の溶剤から選択される。塩化メチレンやトリクロロエタン等のハロゲン化炭化水素系溶剤は樹脂材料を溶解しやすく、また沸点も低いため好適な溶剤の一つである。また、ジメチルホルムアミドやジメチルアセトアミ

ド等の極性の高い非ハロゲン系の溶剤も用いることができる。さらに、トルエン、キシレンやアニソール等の芳香族系や、ジオキサン、ジオキソラン、テトラヒドロフランやピラン等の環状エーテル系、メチルエチルケトン等のケトン系の溶剤も使用可能である。これら溶剤は相互に混合して用いることもでき、また、アルコール等の非溶剤を混合して、溶剤の蒸発速度を制御することも、表面性の優れたフィルムを得るために好ましい方法である。

【0049】

溶液流延法によりフィルム化する場合、本発明の樹脂（A）および樹脂（B）を前記溶剤に溶解したのち、支持体に流延し、乾燥してフィルムとする。好ましい支持体としては、ステンレス鋼のエンドレスベルトや、ポリイミドフィルムや二軸延伸ポリエチレンテレフタレートフィルム等のようなフィルムを用いることができる。

【0050】

必要に応じて、予備乾燥したフィルムを支持体から剥離し、さらに乾燥することもできる。フィルムの乾燥は、一般には、フロート法や、テンターあるいはロール搬送法が利用できる。フロート法の場合、フィルム自体が複雑な応力を受け、光学的特性の不均一が生じやすい。また、テンター法の場合、フィルム両端を支えているピンあるいはクリップの距離により、溶剤乾燥に伴うフィルムの幅収縮と自重を支えるための張力を均衡させる必要があり、複雑な幅の拡縮制御を行う必要がある。一方、ロール搬送法の場合、安定なフィルム搬送のためのテンションは原則的にフィルムの流れ方向（MD方向）にかかるため、応力の方向を一定にしやすい特徴を有する。従って、フィルムの乾燥は、ロール搬送法によることが最も好ましい。

【0051】

上記樹脂組成物を含有してなる未延伸のフィルムの機械的特性を向上させるために可塑剤や可撓性を有する高分子などを添加する方法があるが、ガラス転移温度が低下して耐熱性が損なわれるおそれがある。機械的特性を向上させる他の方法として延伸処理が挙げられるが、従来のフィルムでは延伸処理による位相差の発生が避けられなかった。ところが上記樹脂組成物からなるフィルムは、延伸処

理を施しても位相差が発生しないことを見いだした。フィルムの延伸は、テンターを用いた横延伸、ロールを用いた縦延伸や、自由端一軸延伸、及びこれらを逐次組み合わせた、逐次二軸延伸や、縦と横を同時に延伸する同時二軸延伸等、公知の延伸法を用いることができる。

【0052】

フィルムの延伸温度及び延伸倍率は、得られたフィルムの引裂伝播強度を指標として適宜調整することができる。

【0053】

好ましい延伸温度の範囲は、一般には、DSC法によって求めたフィルムのガラス転移温度をT_gとしたときに、T_gの-30℃から+30℃の範囲であり、更に好ましくはT_gの-20℃から+20℃の範囲である。これより高い温度で延伸した場合、得られたフィルムの引裂伝播強度や耐揉疲労の改善が不十分であったり、延伸倍率が過大になりすぎ工業的な実施が困難となるおそれがある。逆に、これより低い温度で延伸した場合、延伸フィルムのヘーズが大きくなり、極端な場合、フィルムが裂けるなどの工程上の問題を引き起こす。

【0054】

好ましい延伸倍率は、延伸温度にも依存するが、1. 1倍から3倍の範囲で選択される。該熱可塑性樹脂（A）と熱可塑性樹脂（B）がすでに述べた好ましい組成範囲にあるならば、適当な延伸条件を選択することにより、光線透過率やヘーズを低下させることなくフィルムの延伸が可能であり、特に、1. 3倍以上、より好ましくは1. 5倍以上延伸することにより、フィルムの引裂伝播強度や耐揉疲労が大幅に改善され、光線透過率が85%以上であり、ヘーズが1%以下のフィルムを得ることができる。

【0055】

フィルムの延伸による耐揉疲労の改善は、延伸方向への曲げに対して改善され、引き裂き伝播強度の改善は、延伸方向に対して直交する方向への引き裂き伝播強度が改善される。そのため、ロール状フィルムに於いては、フィルム幅方向の引き裂き伝播強度が改善されたフィルムが必要な場合は縦延伸を行い、フィルムの機械方向（長手方向）を改善する場合は横延伸を適用することが好ましい。両

方向の改善は、逐次二軸延伸又は同時二軸延伸が好ましく、同時二軸延伸は、フィルム平面に均一にこれら機械的特性の改善をすることができるため、特に好ましい。

【0056】

溶液流延法でフィルムを製造する場合、フィルムに多少の溶剤が残存していても自己支持性を有する程度に乾燥されていれば、その状態で延伸処理を施し、その後乾燥を進めても良い。

【0057】

本発明のフィルム厚みは、好ましくは $20\text{ }\mu\text{m}$ から $150\text{ }\mu\text{m}$ であり、より好ましくは $30\text{ }\mu\text{m}$ から $100\text{ }\mu\text{m}$ である。好ましいフィルムの厚みムラは、平均厚みの±10%以内であり、より好ましくは±5%以内、さらに好ましくは±2%以内である。フィルムの好ましい厚みムラは未延伸フィルムの厚みムラを低減することにより達成可能であるが、延伸条件を最適に保つことにより、延伸時にフィルムの厚みムラを低減することも可能である。フィルムのガラス転移温度は 130°C 以上が好ましく、 140°C 以上はより好ましい。フィルムの光線透過率は、85%以上が好ましく、より好ましくは、88%以上である。また、フィルムヘーズは2%以下が好ましく、より好ましくは1%以下である。

【0058】

またフィルム化の際に、必要に応じて少量の可塑剤や熱安定剤、紫外線安定剤等の添加剤を加えても良い。特に熱可塑性樹脂(A)のイミド含有率が40モル%以上と高い場合、得られるフィルムは硬く脆くなる傾向にあるため、フィルムの応力白化や裂けを防止する目的で可塑剤を加えることは有効である。

【0059】

好ましい可塑剤を例示すると、フタル酸系可塑剤としては、フタル酸ジメチル、フタル酸ジエチル、フタル酸ジ-n-ブチル、フタル酸ジ-n-オクチル、フタル酸ジ-n-エチルヘキシル、フタル酸ジイソオクチル、フタル酸ジ-n-オクチル、フタル酸ジ-n-デシル、フタル酸ジイソデシル、フタル酸ジ-n-ドデシル、フタル酸ジイソトリデシル、フタル酸ジシクロヘキシル、フタル酸ブチルベンジル、フタル酸ジ-2-エチルヘキシル、イソフタル酸ジ-2-エチルヘ

キシル、脂肪族二塩基酸系可塑剤としては、アジピン酸ジ-n-デシル、アジピン酸ジイソデシル、アジピン酸ジ-2-エチルヘキシル、アゼライン酸ジ-2-エチルヘキシル、セバシン酸ジブチル、セバシン酸ジ-2-エチルヘキシル、リン酸エステル系可塑剤としては、リン酸トリプチル、リン酸トリー-2-エチルヘキシル、リン酸-2-エチルヘキシル、リン酸トリクレジール、エポキシ系可塑剤としては、エポキシ化大豆油、エポキシ化トール油脂肪酸-2-エチルヘキシル、脂肪酸エステル系可塑剤としては、ステアリン酸ブチル、オレイン酸ブチル、塩素化パラフィン、塩素化脂肪酸メチル、高分子系可塑剤としては、ポリエチレングリコールジメチルエーテル、ポリエチレングリコール安息香酸エステル、エステル基を含有する高分子化合物（アジピン酸、セバシン酸、フタル酸等の2塩基酸と1, 2-プロピレングリコール、1, 3-プロピレングリコール等の重縮合物）等が挙げられる。これら可塑剤の中でも、芳香族基を含まない可塑剤、例えばアジピン酸ジ-n-デシル、アジピン酸ジイソデシル、アジピン酸ジ-2-エチルヘキシル、アゼライン酸ジ-2-エチルヘキシル、セバシン酸ジブチル、セバシン酸ジ-2-エチルヘキシル、リン酸トリプチル、リン酸トリー-2-エチルヘキシル、リン酸-2-エチルヘキシル、リン酸トリクレジール、エポキシ化トール油脂肪酸-2-エチルヘキシル、ステアリン酸ブチル、オレイン酸ブチル、塩素化パラフィン、塩素化脂肪酸メチル、ポリエチレングリコールジメチルエーテル、あるいはエステル基を含有する高分子化合物（アジピン酸、セバシン酸等の2塩基酸と1, 2-プロピレングリコール、1, 3-プロピレングリコール等の重縮合物）等の可塑剤が好ましい。

【0060】

これら可塑剤は本発明のフィルム100重量部に対して2~20重量部添加される。20重量部を超えると、フィルムの耐熱性が著しく損なわれるおそれがある。

【0061】

本発明の延伸フィルムは、必要によりフィルムの片面あるいは両面にコロナ処理やプラズマ処理等の表面処理を行うことができる。特に、フィルム表面にコーティング加工等の表面処理が施される場合や、粘着剤により別のフィルムがラミ

ネットされる場合は、相互の密着性を上げるための手段として、フィルム表面のコロナ処理は好適な方法である。好ましいコロナ処理の程度は、50 dyne/cm以上である。

【0062】

本発明のフィルムは、そのまま、あるいは各種加工を行い、種々の用途に使用できる。特に優れた透明性、低複屈折性などをを利用して光学的等方フィルム、偏光子保護フィルムや透明導電フィルムなど液晶表示装置周辺等の公知の光学的用途に好適に用いることができる。

【0063】

本発明の透明フィルムを偏光子保護フィルムとして使用する場合、延伸されたポリビニルアルコールにヨウ素を含有させた偏光子に貼合して偏光板とすることが出来る。

【0064】

また、本発明の延伸フィルムの表面には、必要に応じハードコート層などのコーティング層を形成することができる。また、本発明のフィルムは、コーティング層を介して、または、介さずに、スパッタリング法等によりインジウムスズ酸化物系等の透明導電層を形成し、プラスチック液晶表示装置の電極基板やタッチパネルの電極基板として用いることもできる。該コーティング層は厚み0.1μmから10μm、好ましくは1μmから5μmの範囲で形成する事が好ましい。好ましいコーティング層を例示すると、有機系コーティング層としては、メラミンプラスチック系、アクリルプラスチック系、ウレタンプラスチック系、アルキドプラスチック系、含フッソ系プラスチック系であり、また有機シリコーン複合系としては、ポリエステルポリオールやエーテル化メチロールメラミンにアルキルトリアルコキシラン、テトラアルコキシランの部分加水分解物を配合したもののが挙げられる。また、アミノシランやエポキシシランの部分加水分解物、シランカップリング剤とアルキルトリアルコキシラン・テトラアルコキシランの部分加水分解物、コロイダルシリカとアルキルトリアルコキシランの加水分解物等のシリコーン系材料も好適に用いることができる。これら材料を本発明の延伸フィルムの片面または両面にコーティング後、熱硬化により耐溶剤性皮膜

を有するフィルムを得ることが出来る。この時、低温硬化型の触媒を同時に用いることは、フィルムの熱変形を抑制するために好ましい方法である。また多官能アクリレート等のモノマーやオリゴマーに光増感剤を添加し、紫外線や電子線により得られる硬化層も好適に用いることが出来る。該コーティング層には、必要により、各種フィラーを添加することができる。透明導電層を有する本発明の延伸フィルムを抵抗膜式タッチパネルの電極フィルムとして用いた場合、フィラーを添加することにより透明電極間での光の干渉による好ましくないニュートンリングの発生や、透明導電基板同士のブロッキングを防止することができる。好ましいフィラーとしては、ポリメタクリル酸エステル系やポリアクリル酸エステル系、ポリオレフィン系、ポリスチレン系、ジビニルベンゼン系、ベンゾグアニン系、有機シリコーン系等の有機系フィラーあるいはシリカやアルミナ、酸化チタン等の無機系フィラーが使用可能である。一方、フィラーの添加により表示像のギラツキ感を与える事があり、フィラー形状、コーティング剤やコーティング条件の最適化により、JIS K 7105の6.6記載の方法で0.125mmの光学くしを用いて測定した透過像像鮮明度を80%以上にすることが望ましい。

【0065】

【実施例】

以下の実施例および比較例に示される各物性値の測定方法を以下に示す。

【0066】

<引裂伝播強度>

島津製作所製のオートグラフを使用してJIS K 7128(トラウザー法)に従い測定した。尚、測定は平均厚みが $50 \pm 5 \mu\text{m}$ のフィルムを使用し、引張速度が200mm/分の条件で行った。また、結果の一覧表におけるMD値は、MD方向に引き裂いた時の数値を示す。

【0067】

<耐揉疲労>

東洋精機製作所社製、MIT耐揉疲労試験機(FOLDING ENDURANCE TESTER)D型を使用し、JIS C 5016に準拠して測定した

尚、測定は、幅15mm、長さ200mm、平均厚み50±5μmの形状のサンプルを使用し、135°折り曲げ（R=0.38）の条件で行った。また結果の一覧表におけるMD値とは、MD方向に折り曲げたときの数値を示す。

【0068】

<ガラス転移温度>

JIS K7121に準拠し測定した。

【0069】

<光線透過率>

JIS K7105-1981の5.5記載の方法により550nmの光を用いて測定した。

【0070】

<ヘーズ>

JIS K7105-1981の6.4記載の方法により測定した。

【0071】

<平面方向の位相差>

顕微偏光分光光度計（オーク製作所：TFM-120AFT）を用い、測定波長514.5nmで測定した。

【0072】

<厚み方向の位相差>

顕微偏光分光光度計（オーク製作所：TFM-120AFT）を用い、514.5nmの測定波長で位相差の角度依存性を測定し、nx、ny、nzを求める。別途フィルムの厚みを測定し、前記式を用いて厚み方向の位相差を計算した。

【0073】

以下実施例に従って本発明を具体的に説明する。

【0074】

比較例1

イソブテンとN-メチルマレイミドから成る交互共重合体（N-メチルマレイミド含量50モル%、ガラス転移温度157°C）75重量部と、アクリロニトリルの含量が28重量%であるアクリロニトリル・スチレン共重合体25重量部（

I/P比=2.46)を、塩化メチレン溶液に固形分濃度15重量%になるように溶解し、ガラス板上に敷いた二軸延伸ポリエチレンテレフタレートフィルム上に流延し室温で60分放置した。その後フィルムを剥し、4片固定治具に挟んで、100°Cで10分間、更に140°Cで10分間、160°Cで30分間の乾燥を行ってフィルムを得た。このフィルムのフィルム平面方向の位相差は4nm、厚み方向の位相差は4nm、光線透過率は92%、ヘーズは0.3%であった。また、ガラス転移温度は147°C、耐揉疲労はMD方向が5回、TD方向が6回、引裂伝播強度は、MD方向が79gf/mm、TD方向が76gf/mmであった。

【0075】

実施例1

比較例1と同様の方法で作成したフィルムを、MD方向に160°Cで1.5倍に延伸した。このフィルムのヘーズは0.4%、フィルムの平面方向の位相差は5nm、厚み方向の位相差は7nmであり、耐揉疲労はMD方向が5回、TD方向が173回、引裂伝播強度は、MD方向が62gf/mm、TD方向が177gf/mmであった。

【0076】

実施例2

比較例1と同様の方法で作成したフィルムを、MD方向に160°Cで1.5倍延伸した後に、TD方向に160°Cで1.5倍延伸した。このフィルムのヘーズは0.4%、フィルムの平面方向の位相差は4nm、厚み方向の位相差は11nmであり、耐揉疲労はMD方向が161回、TD方向が133回、引裂伝播強度は、MD方向が151gf/mm、TD方向が148gf/mmであった。

【0077】

実施例3～5、比較例2

アクリロニトリル・スチレン共重合体の重量部数や、延伸条件を代えてフィルムを得た。フィルムの組成や延伸条件を表1に、対応するフィルムの特性を表2に示した。

【0078】

比較例3

日本ゼオン製ゼオノア1420Rのキシレン溶液（樹脂濃度=35重量%）を調整して、ドープとした。該ドープをバーコーターを用いて、ポリエチレンテレフタレートフィルム上にキャストし、室温で60分間放置後、さらに80°Cで12間乾燥させて、フィルムを得た（ $T_g = 127^\circ\text{C}$ ）。

【0079】

ゼオノアフィルムをMD方向に150°Cで1.5倍延伸した。このフィルムのヘーズは0.4%、フィルムの平面方向の位相差が38nm、厚み方向の位相差が66nmであり、耐揉疲労はMD方向が216回、TD方向が389回、引裂伝播強度は、MD方向が178gf/mm、TD方向が210gf/mmであった。

【0080】

【表1】

	A成分:B成分 (重量比)	B成分中のニトリル 含有単量体含量 (重量%)	延伸条件	
			MD方向	TD方向
比較例1	75:25	28	-	-
実施例1	75:25	28	160°C 1.5倍	-
実施例2	75:25	28	160°C 1.5倍	160°C 1.5倍
実施例3	70:30	26	150°C 1.5倍	-
実施例4	70:30	26	150°C 1.5倍	150°C 1.5倍
実施例5	70:30	26	150°C 2.0倍	150°C 2.0倍
比較例2	100:0	-	170°C 1.5倍	-
比較例3	-	-	150°C 1.5倍	-

【0081】

【表2】

	ガラス転移温度(°C)	フィルム厚み(μm)	光線透過率(%)	ヘイズ(%)	平面方向の位相差(nm)	厚み方向の位相差(nm)	引裂伝播強度(gf/mm) MD/TD	耐揉滅効率(回) MD/TD
比較例1	147	50	92	0.3	4	4	79/76	5/6
実施例1	147	47	92	0.4	5	7	62/177	5/173
実施例2	147	46	92	0.4	4	11	151/148	161/133
実施例3	141	52	92	0.4	4	9	90/169	12/215
実施例4	141	48	91	0.5	4	22	183/132	205/148
実施例5	141	49	91	0.5	4	32	172/163	199/205
比較例2	157	50	93	0.5	190	201	68/123	3/101
比較例3	127	50	92	0.4	38	66	178/210	216/389

【0082】

【発明の効果】

本発明の特定の熱可塑性樹脂からなる少なくとも1方向に延伸したフィルムは、フィルムの平面方向及び厚み方向の位相差が極めて小さく、更に機械的特性に優れる光学フィルムを与える。

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 フィルム平面方向および厚み方向の位相差が極めて小さく、機械的特性に優れる透明延伸フィルムを得る。

【解決手段】 (A) 側鎖に置換または非置換イミド基を有する成分からなる熱可塑性樹脂、および (B) 側鎖に少なくとも置換または非置換フェニル基とニトリル基を有する熱可塑性樹脂を含有するフィルムを少なくとも1方向に延伸した延伸フィルムであり、フィルムの平面方向の位相差が20nm未満である延伸フィルム。

【選択図】 なし

出願人履歴情報

識別番号 [000000941]

1. 変更年月日 1990年 8月27日

[変更理由] 新規登録

住 所 大阪府大阪市北区中之島3丁目2番4号
氏 名 鐘淵化学工業株式会社